

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-244107

(P2001-244107A)

(43) 公開日 平成13年9月7日 (2001.9.7)

| (51) Int.Cl. <sup>7</sup>          | 識別記号  | F I           | テーマコード* (参考) |
|------------------------------------|-------|---------------|--------------|
| H 0 1 F 1/06                       |       | B 2 2 D 11/06 | 3 6 0 B      |
| B 2 2 D 11/06                      | 3 6 0 | B 2 2 F 1/00  | Y            |
| B 2 2 F 1/00                       |       | 3/00          | C            |
| 3/00                               |       | 9/08          | M            |
| 9/08                               |       | C 2 2 C 38/00 | 3 0 3 D      |
| 審査請求 有 請求項の数15 O L (全 12 頁) 最終頁に続く |       |               |              |

(21) 出願番号 特願2000-371788(P2000-371788)

(22) 出願日 平成12年12月6日 (2000.12.6)

(31) 優先権主張番号 特願平11-362103

(32) 優先日 平成11年12月21日 (1999.12.21)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000183417

住友特殊金属株式会社

大阪府大阪市中央区北浜4丁目7番19号

(72) 発明者 金清 裕和

大阪府三島郡島本町江川2丁目15番17号

住友特殊金属株式会社山崎製作所内

(74) 代理人 100101683

弁理士 奥田 誠司

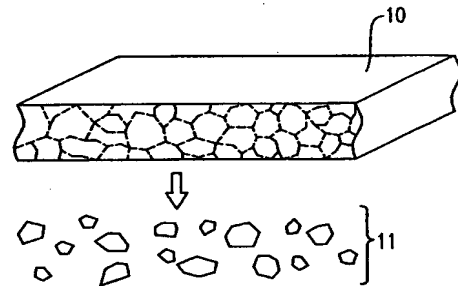
(54) 【発明の名称】 鉄基合金永久磁石粉末およびその製造方法

(57) 【要約】

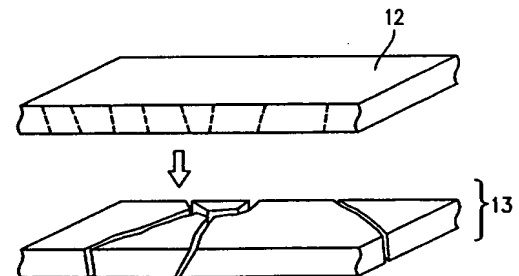
【課題】 粒子の形状を扁平なものから球状に近いものとすることによって成形時における充填性および流動性を改善した鉄基合金永久磁石粉末を提供する。

【解決手段】 単ロール法によってFe-R-B系合金の溶湯を冷却する際、ロール表面速度を調節して厚さ80 $\mu$ m以上300 $\mu$ m以下の急冷凝固合金を形成する。次に、熱処理によって急冷凝固合金を結晶化し、永久磁石特性を有する合金薄帯10を生成した後、合金薄帯10を粉砕することによって、平均粒径が50nm以上300 $\mu$ m以下、長軸方向サイズに対する短軸方向サイズの比が0.3以上1.0以下の粉末11を形成する。

(a)



(b)



する際、単ロール法が用いられることが多い。単ロール法は、合金溶湯を回転する冷却ロールに接触させることによって冷却し凝固させる方法である。この方法による場合、急冷合金の形状は冷却ロールの周速度方向に沿って薄帯（リボン）状に伸びたものとなる。

【0005】従来から、ロール表面速度を15m/秒以上にして、厚さ50 $\mu$ m以下の急冷合金薄帯を作製することが行われている。このようにして作製した急冷合金薄帯は、熱処理によって永久磁石特性が付与された後、平均粒径が300 $\mu$ m以下になるように粉碎され、磁石粉末となる。この磁石粉末は、例えば圧縮成形や射出成形によって所望形状を持つ永久磁石体を構成することになる。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】厚さ50 $\mu$ m以下の比較的薄い急冷合金薄帯を粉碎して平均粒径が300 $\mu$ m以下の粉末を作製した場合、得られた粉末粒子の形状は扁平なものとなる。そのため、上記の従来技術によって作製された磁石粉は、成形時の充填性や流動性が悪く、磁粉充填率（磁粉体積/ポンド磁石体積）は、圧縮成形の場合には最高で80%、射出成形の場合には最高でも65%である。この磁粉充填率は、最終製品である永久磁石体の特性に影響を与えるものであり、永久磁石特性を改善するため、磁粉充填率を向上させることが強く望まれている。

【0007】本発明はかかる諸点に鑑みてなされたものであり、その主な目的は、粒子形状を扁平なものから球状に近いものとすることによって成形時における充填性および流動性を改善した鉄基合金永久磁石粉末ならびにその製造方法を提供することにある。

【0008】また、本発明の他の目的は、上記の鉄基合金永久磁石粉末を用い、磁粉充填率を改善することによって優れた永久磁石特性を発揮できるようにしたポンド磁石および当該ポンド磁石を備えた電気機器を提供することにある。

【0009】

【課題を解決するための手段】本発明による鉄基合金永久磁石粉末の製造方法は、Fe-R-B系合金の溶湯を急冷法によって冷却し、それによって厚さ80 $\mu$ m以上300 $\mu$ m以下の急冷凝固合金を形成する冷却工程と、熱処理によって前記急冷凝固合金を結晶化し、永久磁石特性を有する合金を生成する工程と、前記合金を粉碎することによって平均粒径が50 $\mu$ m以上300 $\mu$ m以下で、しかも、粉末粒子の長軸方向サイズに対する短軸方向サイズの比が0.3以上1.0以下の粉末を形成する工程とを包含する。

【0010】好ましい実施形態においては、前記熱処理の前に前記急冷凝固合金を粗粉碎する工程を更に実行する。

【0011】前記粉碎は、ピンミル装置で行うことが好

ましい。

【0012】好ましい実施形態において、前記急冷凝固合金は、前記熱処理の前において、Fe<sub>23</sub>B<sub>6</sub>、Fe<sub>3</sub>B、R<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B、およびR<sub>2</sub>Fe<sub>23</sub>B<sub>3</sub>からなる群から選択された少なくとも一つの準安定相、および/または非晶質相を含む金属組織を含有している。

【0013】好ましい実施形態において、前記永久磁石特性を有する合金は、Fe<sub>100-x-y</sub>R<sub>x</sub>B<sub>y</sub>（Rは、Pr、Nd、Dy、およびTbからなる群から選択された少なくとも1種の希土類元素）の組成式で表される永久磁石であって、前記組成式中のxおよびyが、1原子% $\leq x \leq 6$ 原子%および15原子% $\leq y \leq 25$ 原子%の関係を満足し、かつ、構成相として、Fe、FeとBの合金、およびR<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B型結晶構造を有する化合物を含み、各構成相の平均結晶粒径が150nm以下である。

【0014】前記冷却工程において、ロール表面速度が1m/秒以上13m/秒以下の範囲で回転するロールに前記溶湯を接触させ、それによって前記急冷凝固合金を形成することが好ましい。

【0015】前記冷却工程は、減圧雰囲気下において、前記Fe-R-B系合金の溶湯を急冷する工程を包含することが好ましい。

【0016】前記減圧雰囲気の絶対圧力は50kPa以下であることが好ましい。

【0017】好ましい実施形態において、前記熱処理によって結晶化された前記合金は、ナノコンポジット磁石である。

【0018】本発明によるポンド磁石の製造方法は、上記の何れかの鉄基合金永久磁石粉末の製造方法によって前記鉄基合金永久磁石粉末を用意する工程と、前記鉄基合金永久磁石粉末を成形する工程とを包含する。

【0019】好ましい実施形態では、圧縮成形法によって80%を越える充填率で前記鉄基合金永久磁石粉末を成形する。

【0020】好ましい実施形態では、射出成形法によって65%を越える充填率で前記鉄基合金永久磁石粉末を成形する。

【0021】本発明による鉄基合金永久磁石粉末は、Fe<sub>100-x-y</sub>R<sub>x</sub>B<sub>y</sub>（Feは鉄、Bはボロン、Rは、Pr、Nd、Dy、およびTbからなる群から選択された少なくとも1種の希土類元素）の組成式で表される鉄基合金永久磁石粉末であって、前記組成式中のxおよびyが、1原子% $\leq x \leq 6$ 原子%、および15原子% $\leq y \leq 25$ 原子%の関係を満足し、かつ、構成相として、Fe、FeとBの合金、およびR<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B型結晶構造を有する化合物を含み、各構成相の平均結晶粒径が150nm以下、平均粒径は300 $\mu$ m以下であり、粉末の長軸方向サイズに対する短軸方向サイズの比が0.3以上1.0以下である。

【0022】本発明によるポンド磁石は、上記の鉄基合

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】  $Fe-R-B$  系合金の溶湯を急冷法によって冷却し、それによって厚さ  $80\mu m$  以上  $300\mu m$  以下の急冷凝固合金を形成する冷却工程と、熱処理によって前記急冷凝固合金を結晶化し、永久磁石特性を有する合金を生成する工程と、前記合金を粉砕することによって、平均粒径が  $50\mu m$  以上  $300\mu m$  以下で、しかも、粉末粒子の長軸方向サイズに対する短軸方向サイズの比が  $0.3$  以上  $1.0$  以下の粉末を形成する工程と、を包含する鉄基合金永久磁石粉末の製造方法。

【請求項 2】 前記熱処理の前に前記急冷凝固合金を粗粉砕する工程を更に包含している請求項 1 に記載の鉄基合金永久磁石粉末の製造方法。

【請求項 3】 前記粉砕は、ピンミル装置で行う請求項 1 に記載の鉄基合金永久磁石粉末の製造方法。

【請求項 4】 前記急冷凝固合金は、前記熱処理の前において、 $Fe_{23}B_6$ 、 $Fe_3B$ 、 $R_2Fe_{14}B$ 、および  $R_2Fe_{23}B_3$  からなる群から選択された少なくとも一つの準安定相、および／または非晶質相を含有している請求項 1 に記載の鉄基合金永久磁石粉末の製造方法。

【請求項 5】 前記永久磁石特性を有する合金は、 $Fe_{100-x-y}R_xB_y$  ( $R$  は、 $Pr$ 、 $Nd$ 、 $Dy$ 、および  $Tb$  からなる群から選択された少なくとも 1 種の希土類元素) の組成式で表される永久磁石であって、前記組成式中の  $x$  および  $y$  が、

$1\text{原子}\% \leq x \leq 6\text{原子}\%$ 、および  $15\text{原子}\% \leq y \leq 25\text{原子}\%$  の関係を満足し、かつ構成相として、 $Fe$ 、 $Fe$  と  $B$  の合金、および  $R_2Fe_{14}B$  型結晶構造を有する化合物を含み、各構成相の平均結晶粒径が  $150\text{nm}$  以下である請求項 1 に記載の鉄基合金永久磁石粉末の製造方法。

【請求項 6】 前記冷却工程において、ロール表面速度が  $1\text{m/秒}$  以上  $13\text{m/秒}$  以下の範囲で回転するロールに前記溶湯を接触させ、それによって前記急冷凝固合金を形成する請求項 1 に記載の鉄基合金永久磁石粉末の製造方法。

【請求項 7】 前記冷却工程は、減圧雰囲気下において、前記  $Fe-R-B$  系合金の溶湯を急冷する工程を包含する請求項 6 に記載の鉄基合金永久磁石粉末の製造方法。

【請求項 8】 前記減圧雰囲気の絶対圧力は  $50\text{kPa}$  以下であることを特徴とする請求項 7 に記載の鉄基合金永久磁石粉末の製造方法。

【請求項 9】 前記熱処理によって結晶化された前記合金は、ナノコンポジット磁石である請求項 1 に記載の鉄基合金永久磁石粉末の製造方法。

【請求項 10】 請求項 1 から 9 の何れかに記載の鉄基合金永久磁石粉末の製造方法によって製造された前記鉄基合金永久磁石粉末を用意する工程と、

前記鉄基合金永久磁石粉末を成形する工程とを包含するボンド磁石の製造方法。

【請求項 11】 圧縮成形法によって  $80\%$  を越える充填率で前記鉄基合金永久磁石粉末を成形することを特徴とする請求項 10 に記載のボンド磁石の製造方法。

【請求項 12】 射出成形法によって  $65\%$  を越える充填率で前記鉄基合金永久磁石粉末を成形することを特徴とする請求項 10 に記載のボンド磁石の製造方法。

【請求項 13】  $Fe_{100-x-y}R_xB_y$  ( $Fe$  は鉄、 $B$  はボロン、 $R$  は、 $Pr$ 、 $Nd$ 、 $Dy$ 、および  $Tb$  からなる群から選択された少なくとも 1 種の希土類元素) の組成式で表される鉄基合金永久磁石粉末であって、前記組成式中の  $x$  および  $y$  が、

$1\text{原子}\% \leq x \leq 6\text{原子}\%$ 、および  $15\text{原子}\% \leq y \leq 25\text{原子}\%$  の関係を満足し、かつ構成相として、 $Fe$ 、 $Fe$  と  $B$  の合金、および  $R_2Fe_{14}B$  型結晶構造を有する化合物を含み、各構成相の平均結晶粒径が  $150\text{nm}$  以下、平均粒径は  $300\mu m$  以下であり、粉末の長軸方向サイズに対する短軸方向サイズの比が  $0.3$  以上  $1.0$  以下の鉄基合金永久磁石粉末。

【請求項 14】 請求項 13 に記載の鉄基合金永久磁石粉末を含むボンド磁石。

【請求項 15】 請求項 14 に記載のボンド磁石を備えた電気機器。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、各種モータ、アクチュエータ、スピーカ、メータ、フォーカスコンバージェンスリング等の電気機器に用いられる磁石として最適な鉄基合金永久磁石の粉末およびその製造方法に関する。また、本発明は、上記磁石粉末から作製されたボンド磁石、および当該ボンド磁石を備えた各種電気機器に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 $Fe-R-B$  系合金系のナノコンポジット磁石は、例えば  $Fe_3B$  や  $Fe_{23}B_6$  等のソフト磁性相である鉄基ホウ化物の微結晶とハード磁性相である  $R_2Fe_{14}B$  相の微結晶とが同一金属組織内において均一に分布し、両者が交換相互作用によって磁氣的に結合した鉄基合金永久磁石である。

【0003】ナノコンポジット磁石は、ソフト磁性相を含みながらも、ソフト磁性相とハード磁性相との間の磁氣的結合によって優れた磁石特性を発揮することができる。また、 $Nd$  等の希土類元素  $R$  を含まないソフト磁性相が存在する結果、全体として希土類元素  $R$  の含有量が低く抑えられる。このことは、磁石の製造コストを低減し、磁石を安定に供給するうえでも好都合である。

【0004】このようなナノコンポジット磁石は、溶融した原料合金を急冷法によって凝固させた後、適切な熱処理を施すことによって作製される。原料合金溶湯を急冷

金永久磁石粉末を含む。圧縮成形法による場合は80%を越える充填率を示し、射出成形法による場合は65%を越える充填率を示す。

【0023】本発明による電気機器は上記ボンド磁石を備えている。

#### 【0024】

【発明の実施の形態】本発明では、まず、Fe-R-B系合金の溶湯をジェットキャスト法やストリップキャスト法などの急冷法によって冷却し、それによって厚さ80 $\mu$ m以上300 $\mu$ m以下の急冷凝固合金を形成する。次に、熱処理によって急冷凝固合金に永久磁石特性を与えた後、この合金を粉砕することによって平均粒径が50 $\mu$ m以上300 $\mu$ m以下で粉末粒子の長軸方向サイズに対する短軸方向サイズの比が0.3以上1.0以下の粉末を形成する。本発明によれば、粉末中で粒径が50 $\mu$ mを超える粒子の60重量%以上の粒子について、長軸方向サイズに対する短軸方向サイズの比を0.3以上1.0以下とすることが可能である。

【0025】Fe-R-B系合金としては、Fe<sub>100-x-y</sub>R<sub>x</sub>B<sub>y</sub>（Feは鉄、Bはボロン、RはPr、Nd、Dy、およびTbからなる群から選択された少なくとも1種の希土類元素である）が好適に用いられる。好ましい実施形態における上記組成式中のxおよびyは、1原子% $\leq x \leq 6$ 原子%、1.5原子% $\leq y \leq 2.5$ 原子%の関係を満足する。好ましい実施形態では、上記組成の合金溶湯をメルトクエンチング（melt-quenching）法によって冷却し、アモルファス相を含む急冷凝固合金を形成した後、この急冷凝固合金を加熱することによって微結晶を構成相中に形成して製造することができる。均一な組織を得るために、急速冷却は減圧雰囲気下で行うことが好ましい。好ましい実施形態では、冷却ロールに合金溶湯を接触させ、それによって急冷凝固合金を形成する。

【0026】本発明では、前述のように、急冷凝固直後の合金薄帯の厚さを80 $\mu$ m以上300 $\mu$ m以下とする。単ロール法などのメルトスピニング法を用いる場合、冷却ロールの表面速度を1m/秒以上13m/秒以下の範囲内に調整することによって、急冷凝固直後の合金薄帯の厚さを80 $\mu$ m以上300 $\mu$ m以下に制御することができる。合金薄帯の厚さをこのように調整する理由を以下に説明する。

【0027】ロール表面速度が1m/秒を下回ると、急冷合金薄帯の厚さは300 $\mu$ mを越えて厚くなるが、粗大な $\alpha$ -FeおよびFe<sub>2</sub>Bの多い急冷合金組織が形成されるため、熱処理を施してもハード磁性相であるR<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>Bが析出せず、永久磁石特性が発揮されない。

【0028】一方、ロール表面速度が13m/秒を上回ると、急冷合金薄帯の厚さが80 $\mu$ mを下回って薄くなるとともに、熱処理後の粉砕工程では、ロール接触面にほぼ垂直な方向（合金薄帯の厚さ方向）に沿って破断し

やすくなる。その結果、急冷合金薄帯は扁平な形状に割れやすく、得られた粉末粒子の長軸方向サイズに対する短軸方向サイズの比は0.3未満になる。長軸方向サイズに対する短軸方向サイズの比が0.3を下回るように扁平な粉末粒子では、磁粉充填率を改善することは困難である。

【0029】以上のことから、好ましい実施形態ではロール表面速度を調節し、急冷合金薄帯の厚さを80 $\mu$ m以上300 $\mu$ m以下の範囲に設定している。その結果、粉砕工程によって、平均粒径が300 $\mu$ m以下で、長軸方向サイズに対する短軸方向サイズの比が0.3以上1.0以下の磁石粉末を製造することが可能になる。この比の更に好ましい範囲は、0.4以上1.0以下である。

【0030】なお、急冷凝固合金は、結晶化のための熱処理の前において、非晶質組織を有しているか、あるいは、Fe<sub>23</sub>B<sub>6</sub>、Fe<sub>3</sub>B、R<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B、およびR<sub>2</sub>Fe<sub>23</sub>B<sub>3</sub>からなる群から選択された少なくとも一つの準安定相と非晶質相とが混在する金属組織を有している場合がある。冷却速度が速い場合には準安定相の割合は減少し、非晶質相の割合が多くなる。

【0031】急冷凝固合金に対する熱処理によって生成された微結晶は、鉄、鉄とホウ素の合金、R<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B型結晶構造を有する化合物などから形成されている。各構成相の平均結晶粒径は150nm以下であることが好ましい。各構成相のより好ましい平均結晶粒径は、100nm以下であり、更に好ましい平均結晶粒径は60nm以下である。本発明によれば、粉砕前の合金薄帯（厚さ：80~300 $\mu$ m）が上記微結晶から構成されているため、粉砕工程によって種々の方位に破断しやすい。その結果、球状に近い粉末粒子が得られやすくなると考えられる。すなわち、本発明によれば、一定の方位に沿って長く伸びた粉末粒子が得られるのではなく、等軸的な形状、すなわち球形に近い形状の粉末粒子が形成される。

【0032】これに対して、ロール表面速度を速くして合金薄帯の厚さを80 $\mu$ mより薄くすると、前述のように、合金薄帯の金属組織がロール接触面に垂直な方位に揃う傾向がある。そのため、その方位に沿って破断しやすくなり、粉砕によって得られた粉末粒子は、合金薄帯の表面に平行な方向に沿って長く伸びた形状となりやすく、粉末粒子の長軸方向サイズに対する短軸方向サイズの比は0.3未満となる。

【0033】図1(a)は、本発明による磁石粉末製造方法の粉砕工程前における合金薄帯10と、粉砕工程後の粉末粒子11を模式的に示している。一方、図1

(b)は、上記の従来技術による磁石粉末製造方法の粉砕工程前における合金薄帯12と、粉砕工程後の粉末粒子13を模式的に示している。

【0034】図1(a)に示されるように、本発明の場

合は、粉碎前の合金薄帯 10 が粒径の小さな等軸晶によって構成されているため、ランダムな方位に沿って破断しやすく、等軸的な粉末粒子 11 が生成されやすい。これに対し、従来技術の場合は、図 1 (b) に示されるように、合金薄帯 12 の表面に対してほぼ垂直な方向に破断しやすいため、粒子 13 の形状は扁平なものとなる。

【0035】なお、合金溶湯の急冷凝固を減圧雰囲気で行うと、希土類金属量が僅かであるにもかかわらず、 $R_2Fe_{14}B$  型結晶構造を有する化合物の微結晶（平均粒径 150 nm 以下）を均一に形成することができ、その結果、優れた磁気特性を示す永久磁石を作製することが可能になる。

【0036】これに対して、上記組成の合金溶湯を常圧雰囲気下で冷却する場合は、溶湯の冷却速度が不均一になるため、 $\alpha-Fe$  の結晶が生成されやすく、 $R_2Fe_{14}B$  型結晶構造を有する化合物を生成することができなくなる。また、冷却速度の不均一は不均一相の発生を招くため、結晶化のための熱処理を行うと、結晶粒が粗大化してしまうという問題をも引き起こす。

【0037】また、本発明の永久磁石粉末においては、鉄、鉄とホウ素との合金からなるソフト磁性組織相、および  $R_2Fe_{14}B$  型結晶構造を有するハード磁性化合物相とが混在し、しかも各構成相の平均結晶粒径が小さいため、交換結合が強まっている。

【0038】〔組成限定理由〕希土類元素 R は、永久磁石特性を発現するために必要なハード磁性相である  $R_2Fe_{14}B$  に必須の元素である。R の含有量 (x) が 1 原子%未満では、 $R_2Fe_{14}B$  型結晶構造を有する化合物相を析出することができず、保磁力発現効果が小さい。また、6 原子%を超えると、ハード磁性相である  $R_2Fe_{14}B$  が生成されず、保磁力が著しく低下してしまう。このため、希土類元素 R の組成比 y は  $1 \text{ 原子}\% \leq x \leq 6 \text{ 原子}\%$  を満足する必要がある、 $2 \text{ 原子}\% \leq x \leq 5.7 \text{ 原子}\%$  を満足することが好ましい。

【0039】ボロン (B) は、永久磁石材料のソフト磁性相である  $Fe_3B$  や  $Fe_{23}B_6$  等の鉄基ホウ化物と、ハード磁性相である  $R_2Fe_{14}B$  とに必須の元素である。B の含有量 (組成比 y) が 1.5 原子%未満では、液体急冷法によって溶湯合金を急冷してもアモルファス組織が得にくい。そのため、単ロール法によって原料合金の溶湯を急冷凝固させる場合に、厚さが  $70 \mu m$  以上  $300 \mu m$  以下の範囲内になる条件で急冷凝固合金を形成すると、好ましい金属組織が生成されず、熱処理しても十分な永久磁石特性が発現しない。また、2.5 原子%を超えると、減磁曲線の角形比が著しく低下し、残留磁束密度  $B_r$  が低下するので好ましくない。このためボロン組成比 x は、 $1.5 \text{ 原子}\% \leq x \leq 2.5 \text{ 原子}\%$  を満足する必要がある、 $1.6 \text{ 原子}\% \leq y \leq 2.0 \text{ 原子}\%$  を満足することが好ましい。なお、B の一部は C (炭素) で置換されていても良い。

【0040】なお、原料には、元素 M (Al、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、および Pb からなる群から選択された少なくとも 1 種の元素) を添加しても良い。元素 M の添加は、角形比  $J_r/J_s$  の向上、および最適な磁気特性を発揮し得る使用温度範囲の拡大などの効果をもたらす。元素 M の含有量が 0.05 原子%未満では、このような効果が十分に発揮されず、7 原子%を超えると磁化が低下し出す。このため、添加元素 M の組成比 z は  $0.05 \text{ 原子}\% \leq z \leq 7 \text{ 原子}\%$  を満足する必要がある、 $0.2 \text{ 原子}\% \leq z \leq 5 \text{ 原子}\%$  を満足することが好ましい。

【0041】更に、原料にコバルト (Co) を添加しても良い。Co は、Fe の一部と置換されることによって角形比を改善し、最大エネルギー積を向上させる効果を発揮する。このため、角形比を特に高めたい場合に Co を添加することが好ましい。

【0042】なお、Fe は上記元素の含有残余を占めている。

【0043】次に、本発明による鉄基永久磁石合金粉末の製造方法について、好ましい実施形態を詳細に説明する。

【0044】まず、前述の組成式で表現される原料を用意し、この原料を加熱溶解することによって合金溶湯を作製する。この合金溶湯をメルトクエンチング法によって急冷し、アモルファス相を含む急冷凝固合金を形成する。メルトクエンチング法としては、単ロール法を用いたメルトスピニング法の他に、ストリップキャスト法を用いることも可能である。その他に、厚さ  $80 \mu m$  以上  $300 \mu m$  以下の急冷合金を形成できるのであれば、双ロールを用いた溶湯凝固装置を利用することも可能である。

【0045】〔急冷装置の説明〕本実施形態では、例えば図 2 に示すメルトスピニング装置を用いて原料合金を製造する。酸化しやすい希土類元素を含む原料合金の酸化を防ぐため、不活性ガス雰囲気中で合金製造工程を実行する。不活性ガスとしてはヘリウムまたはアルゴン等の希ガスをを用いることが好ましい。なお、窒素は希土類元素と反応しやすいため、不活性ガスとして用いることは好ましくない。

【0046】図 2 の装置は、真空または不活性ガス雰囲気気を保持し、その圧力を調整することが可能な原料合金の溶解室 1 および急冷室 2 を備えている。

【0047】溶解室 1 は、所望の磁石合金組成になるように配合された原料 20 を高温にて溶解する溶解炉 3 と、底部に出湯ノズル 5 を有する貯湯容器 4 と、大気の進入を抑制しつつ配合原料を溶解炉 3 内に供給するための配合原料供給装置 8 とを備えている。貯湯容器 4 は、原料合金の溶湯 21 を貯え、その出湯温度を所定のレベルに維持できる加熱装置 (不図示) を有している。

【0048】急冷室2は、出湯ノズル5から出た溶湯21を急冷凝固するための回転冷却ロール7を備えている。

【0049】この装置においては、溶解室1および急冷室2内の雰囲気およびその圧力が所定の範囲に制御される。そのために、雰囲気ガス供給口1b、2b、および8bとガス排気口1a、2a、および8aとが装置の適切な箇所に設けられている。特にガス排気口2aは、急冷室2内の絶対圧を真空 $\sim 50\text{ kPa}$ の範囲内に制御するため、ポンプに接続されている。

【0050】溶解炉3は傾動可能であり、ロート6を介して溶湯21を貯湯容器4内に適宜注ぎ込む。溶湯21は貯湯容器4内において不図示の加熱装置によって加熱される。

【0051】貯湯容器4の出湯ノズル5は、溶解室1と急冷室2との隔壁に配置され、貯湯容器4内の溶湯21を下方に位置する冷却ロール7の表面に流下させる。出湯ノズル5のオリフィス径は、例えば $0.5\sim 2.0\text{ mm}$ である。溶湯21の粘性が大きい場合、溶湯21は出湯ノズル5内を流れにくくなるが、本実施形態では急冷室2を溶解室1よりも低い圧力状態に保持するため、溶解室1と急冷室2との間に圧力差が形成され、溶湯21の出湯がスムーズに実行される。

【0052】冷却ロール7は、Cu、Fe、またはCuやFeを含む合金から形成することが好ましい。CuやFe以外の材料で冷却ロールを作製すると、急冷合金の冷却ロールに対する剥離性が悪くなるため、急冷合金がロールに巻き付くおそれがあり好ましくない。冷却ロール7の直径は例えば $300\sim 500\text{ mm}$ である。冷却ロール7内に設けた水冷装置の水冷能力は、単位時間あたりの凝固潜熱と出湯量とに応じて算出し、調節される。

【0053】冷却ロール7の表面は、例えばクロムめっき層で覆われている。冷却ロール7の表面粗度は、中心線平均粗さ $R_a \leq 0.8\text{ }\mu\text{m}$ 、最大 $R_{max} \leq 3.2\text{ }\mu\text{m}$ 、十点平均粗さ $R_z \leq 3.2\text{ }\mu\text{m}$ であることが好ましい。冷却ロール7の表面が粗いと、急冷合金がロールに張り付きやすいため好ましくない。

【0054】図2に示す装置によれば、例えば合計 $20\text{ kg}$ の原料合金を $15\sim 30$ 分間で急冷凝固させることができる。こうして形成した急冷合金は、厚さ： $80\text{ }\mu\text{m}\sim 300\text{ }\mu\text{m}$ 、幅： $2\text{ mm}\sim 6\text{ mm}$ の合金薄帯（合金リボン）22である。【急冷方法の説明】まず、前述の組成式で表現される原料合金の溶湯21を作製し、図2の溶解室1の貯湯容器4に貯える。次に、この溶湯21は出湯ノズル5から減圧 $A_r$ 雰囲気中の水冷ロール7上に出湯され、水冷ロール7との接触によって急冷され、凝固する。急冷凝固方法としては、冷却速度の高精度の制御が可能な方法を用いる必要がある。

【0055】本実施形態では、溶湯21の冷却凝固に際して、冷却速度を $10^3\sim 10^5\text{ }^\circ\text{C}/\text{秒}$ とする。この冷却

速度で合金の温度を $\Delta T_1$ だけ低い温度に低下させる。急冷前の合金溶湯21の温度は融点 $T_m$ に近い温度（例えば $1200\sim 1300\text{ }^\circ\text{C}$ ）にあるため、合金の温度は冷却ロール7上で $T_m$ から $(T_m - \Delta T_1)$ にまで低下する。本願発明者の実験によれば、最終的な磁石特性を向上させるという観点から $\Delta T_1$ は $700\sim 1100\text{ }^\circ\text{C}$ の範囲内にあることが好ましい。

【0056】合金の溶湯21が冷却ロール7によって冷却される時間は、回転する冷却ロール7の外周表面から合金が接触してから離れるまでの時間に相当し、本実施形態の場合は $0.05\sim 50$ ミリ秒である。その間に、合金の温度は更に $\Delta T_2$ だけ低下し、凝固する。その後、凝固した合金は冷却ロール7から離れ、不活性雰囲気中を飛行する。合金は薄帯状で飛行している間に雰囲気ガスに熱を奪われる結果、その温度は $(T_m - \Delta T_1 - \Delta T_2)$ に低下する。 $\Delta T_2$ は、装置のサイズや雰囲気ガスの圧力によって変化するが、約 $100\text{ }^\circ\text{C}$ またはそれ以上である。

【0057】なお、急冷室2内の雰囲気は減圧状態にする。雰囲気は、絶対圧力が $50\text{ kPa}$ 以下の不活性ガスから構成することが好ましい。なお、雰囲気ガスの圧力が $50\text{ kPa}$ を超える場合は、回転ロールと合金溶湯との間に雰囲気ガスが巻き込まれることの影響が顕著になるため、均一な組織が得られないおそれが強まるので好ましくない。

【0058】本発明ではロール表面速度を $1\text{ m}/\text{秒}$ 以上 $13\text{ m}/\text{秒}$ 以下の範囲内に調節することによって、急冷合金薄帯の厚さを $80\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $300\text{ }\mu\text{m}$ 以下の範囲に設定している。ロール表面周速度が $1\text{ m}/\text{秒}$ 未満では、平均結晶粒径が大きくなりすぎるため目的とする磁気特性が得られなくなるので好ましくない。一方、ロール表面周速度が $13\text{ m}/\text{秒}$ を超えると、急冷合金薄帯の厚さが $70\text{ }\mu\text{m}$ を下回り、後に説明する粉碎工程で長軸方向サイズに対する短軸方向サイズの比（短軸/長軸）が $0.3$ 未満の粉末粒子しか得られなくなる。

【0059】【熱処理の説明】急冷工程を行った後、急冷合金に対して結晶化熱処理を行うことによって平均結晶粒径が $100\text{ nm}$ 以下である微結晶を生成する。この熱処理は、 $400\text{ }^\circ\text{C}\sim 700\text{ }^\circ\text{C}$ 、より好ましくは $500\text{ }^\circ\text{C}\sim 700\text{ }^\circ\text{C}$ の温度で $30$ 秒以上加熱することが好ましい。熱処理温度が $700\text{ }^\circ\text{C}$ を超えると、粒成長が著しく、磁気特性が劣化する。逆に、熱処理温度が $400\text{ }^\circ\text{C}$ 未満では、 $R_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相が析出しないため、高い保磁力が得られない。

【0060】上記の条件で熱処理を行えば、微結晶（鉄、鉄とホウ素の合金、および $R_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶構造を有する化合物）をその平均結晶粒径が $150\text{ nm}$ 以下になるように形成することができる。好ましい熱処理時間は熱処理温度に依存して異なるが、例えば $600\text{ }^\circ\text{C}$ で熱処理する場合、 $30$ 秒 $\sim 30$ 分程度の加熱を行うこ

とが好ましい。熱処理時間が30秒を下回ると、結晶化が完了しない場合がある。

【0061】なお、熱処理を行う前に、粗粉碎を行い、平均粒径1mm～500μm程度の粉末状態にしておくことが好ましい。

【0062】〔粉碎工程の説明〕本発明の合金は、例えば図4に示すようなピンディスクミル装置などを用いて粉碎することができる。図4は、本実施形態に使用するピンミル装置の一例を示す断面図である。このピンミル装置40はピンディスクミルであり、片面に複数のピン11が配列されたディスク（円盤）42aおよび42bを2枚対向させ、互いのピン41が衝突しないように配置されている。少なくとも一方の円盤42aおよび/または42bが高速で回転する。図4の例では、円盤42aが軸43の周りを回転する。回転する側の円盤42aの正面図を図5に示す。図5の円盤42a上では、ピン41が複数の同心円を描くように配列されている。固定されている円盤42bでも、ピン41は同心円を描くように配列されている。

【0063】ピンディスクミルによって粉碎されるべき被粉碎物は、投入口44から2枚の円盤が対向している隙間の空間内に送られ、回転する円盤42a上のピン41および停止している円盤42b上のピン41に衝突し、その衝撃によって粉碎されることになる。粉碎によって生成された粉末は矢印Aの方向に飛ばされ、最終的には1箇所に集められる。

【0064】本実施形態のピンミル装置40において、ピン41を支持する円盤42aおよび42bはステンレス鋼などから形成されているが、ピン41はタングステンカーバイド（WC）焼結体等の超硬合金材料から形成されている。超硬合金材料としては、WC焼結体以外にも、TiC、MoC、NbC、TaC、Cr<sub>3</sub>C<sub>2</sub>等が好適に用いることができる。これらの超硬合金は、IVa、Va、およびVIa族に属する金属の炭化物粉末をFe、Co、Ni、Mo、Cu、Pb、もしくはSnまたはこれらの合金を用いて結合した焼結体である。

【0065】本発明の場合、上記ピンミル装置を用いて平均粒径が1μm以上300μm以下となるような条件で粉碎を実行すれば、粒子の長軸方向サイズに対する短軸方向サイズの比が0.3以上1.0以下となる粉末を得ることができる。より望ましい平均粒径の範囲は、5μm以上200μm以下である。本発明で好適に用いられるピンミル装置は、ディスク上にピンが配列されたピンディスクミルに限定されず、例えば、円筒上にピンが配列された装置であってもよい。

【0066】〔磁石体の製造方法の説明〕まず、前述のようにして得られた磁石粉末にエポキシ樹脂からなるバインダーと添加剤とを加え、混練することによってコンパウンドを作製する。次に、コンパウンドの所望形状の成形空間を持つ成形装置によって圧縮成形した後、加熱硬

化工程、洗浄工程、コーティング工程、検査工程、着磁工程を経て、最終的なボンド磁石を得ることができる。

【0067】成形加工は、上述の圧縮成形に限定されるわけではなく、公知の押出成形、射出成形、または圧延成形によってもよい。磁石粉末は、採用する成形法の種類に応じてプラスチック樹脂やゴムと混練されることになる。

【0068】なお、射出成形による場合、樹脂として広く使用されているポリイミド（ナイロン）の他、PPSのように高軟化点樹脂を使用することができる。これは、本発明の磁石粉末が低希土類合金から形成されているため、酸化されにくく、比較的に高い温度で射出成形を行っても磁石特性が劣化しないからである。

【0069】また、本発明の磁石粉は酸化されにくいいため、最終的な磁石表面を樹脂膜でコートする必要もない。従って、例えば、複雑な形状のスロットを持つ部品のスロット内に射出成形によって本発明の磁石粉末および溶融樹脂を圧入し、それによって複雑な形状の磁石を一体的に備えた部品を製造することが可能にある。

【0070】〔電気機器の説明〕本発明は、例えばIPM（Interior Permanent Magnet）型モータに対して好適に適用される。このIPM型モータは、本発明による磁石粉末を用いて作製したロータ一体型磁石を備えることができる。

【0071】好ましい実施形態におけるIPM型モータは、上記磁石粉末が高密度に充填されたボンド磁石を内蔵するロータコアと、このロータコアを囲むステータとを備えている。ロータコアには複数のスロットが形成されており、そのスロット内に、本発明の磁石が位置している。この磁石は、本発明による磁石粉末のコンパウンドを溶融し、ロータコアのスロット内へ直接に充填し、モールドしたものである。

【0072】なお、本発明の磁石は、この種のモータ以外にも、他の種類のモータやアクチュエータなど各種の電気機器に好適に用いられる。

【0073】（実施例）以下、本発明の実施例を説明する。

【0074】実施例No. 1～No. 6の各々について、純度99.5%以上のFe、Co、B、Nd、およびPrをその総量が100グラムとなるように秤量し、石英るつぼ内に投入した。各実施例No. 1～No. 6の組成は表1に示す通りとした。石英るつぼは、底部に直径0.8mmのオリフィスを有しているため、上記原料は石英るつぼ内で溶解された後、合金溶湯となってオリフィスから下方に滴下することになる。原料の溶解は、圧力が2kPaのアルゴン雰囲気下において高周波加熱法を用いて行った。本実施例では、溶解温度を1350℃に設定した。

【0075】合金溶湯の湯面を32kPaで加圧することによって、オリフィスの下方0.8mmの位置にある

銅製ロールの外周面に対し溶湯を噴出させた。ロールは、その外周面の温度が室温程度に維持されるように内部が冷却されながら高速で回転する。このため、オリフィスから滴下した合金溶湯はロール周面に接触して熱を奪われつつ、周速度方向に飛ばされることになる。合金溶湯はオリフィスを介して連続的にロール周面上に滴下されるため、急冷によって凝固した合金は薄带状に長く伸びたリボン（幅：2～5mm、厚さ：70～300μm）の形態を持つことになる。

【0076】本実施例で採用する回転ロール法（単ロール法）の場合、冷却速度はロール周速度および単位時間当たりの溶湯流量によって規定される。なお、流量はオリフィス径（断面積）と溶湯圧力とに依存し、実施例ではオリフィスは直径0.8mm、溶湯噴射圧は30kPaとし、流下レートは約0.1kg/秒であった。\*

\*本実施例ではロール表面速度Vsを2～12m/秒の範囲に設定した。得られた急冷合金薄帯の厚さは、85μm以上272μm以下の範囲にあった。

【0077】アモルファス相を含む急冷凝固合金とするためには、冷却速度は10<sup>3</sup>℃/秒以上であることが好ましく、この範囲の冷却速度を達成するには、ロール周速度を2m/秒以上に設定することが好ましい。

【0078】こうして得た急冷合金の薄帯に対し、CuKαの特性X線による分析を行った。実施例No. 2およびNo. 4についての粉末X線回折パターンを図3に示す。図3からわかるように、実施例No. 2およびNo. 4の急冷凝固合金は、非晶質組織とFe<sub>23</sub>B<sub>6</sub>とを含む金属組織を有している。

【0079】

【表1】

|     | No. | 合金組成（原子％） |    |      |         | 0-#表面速度<br>Vs(m/s) | 熱処理温度<br>(℃) | 合金厚<br>(μm) |
|-----|-----|-----------|----|------|---------|--------------------|--------------|-------------|
|     |     | R         | Fe | B    | M       |                    |              |             |
| 実施例 | 1   | Nd3       | 殘部 | 18.5 | -       | 12                 | 620          | 87          |
|     | 2   | Nd4       | 殘部 | 18.5 | -       | 8                  | 640          | 144         |
|     | 3   | Nd4.5     | 殘部 | 17.0 | Co1     | 2                  | 650          | 255         |
|     | 4   | Nd5.5     | 殘部 | 19.0 | Co5+Cr5 | 6                  | 680          | 170         |
|     | 5   | Nd2.5+Pr2 | 殘部 | 16.0 | Co3+Ga1 | 9                  | 630          | 120         |
|     | 6   | Nd3.5+Dy1 | 殘部 | 18.5 | Co3+Si1 | 7                  | 640          | 150         |
| 比較例 | 7   | Nd3       | 殘部 | 18.5 | -       | 15                 | 620          | 61          |
|     | 8   | Nd4.5     | 殘部 | 17.0 | Co1     | 20                 | 650          | 30          |
|     | 9   | Nd3.5+Dy1 | 殘部 | 18.5 | Co3+Si1 | 30                 | 640          | 22          |

【0080】表1において、例えば「R」と表示している欄の「Nd5.5」は希土類元素としてNdを5.5原子％添加したことを示しており、「Nd2.5+Pr2」は

【0081】次に、得られた急冷合金薄帯を粗粉碎し、平均粒径850μm以下の粉末を形成した後、表1に示す温度でアルゴン雰囲気中で10分間の熱処理を実

行した。その後、ディスクミル装置によって粗粉碎粉を150μm以下に粉碎し、本発明の磁石粉末（磁石粉）を作製した。表2は、この磁石粉末の磁気特性、および、粒径40μm以上の粉末粒子の長軸方向サイズに対する短軸方向サイズの比（短軸/長軸）を示している。

【0082】

【表2】

|     | No. | 磁石粉の磁気特性           |                        |  | 短軸／長軸 |
|-----|-----|--------------------|------------------------|--|-------|
|     |     | B <sub>r</sub> (T) | H <sub>cj</sub> (kA/m) | (BH) <sub>max</sub> (kJ/m <sup>3</sup> ) |       |
| 実施例 | 1   | 1.22               | 245                    | 76                                       | 0.33  |
|     | 2   | 1.08               | 265                    | 82                                       | 0.58  |
|     | 3   | 1.11               | 300                    | 95                                       | 0.83  |
|     | 4   | 0.79               | 610                    | 72                                       | 0.92  |
|     | 5   | 1.20               | 310                    | 98                                       | 0.44  |
|     | 6   | 1.15               | 360                    | 102                                      | 0.75  |
| 比較例 | 7   | 1.21               | 250                    | 72                                       | 0.21  |
|     | 8   | 1.09               | 305                    | 89                                       | 0.14  |
|     | 9   | 1.14               | 358                    | 98                                       | 0.08  |



【0083】表2からわかるように、実施例No. 1～No. 6の磁石粉における短軸／長軸比は、何れも0.3以上1.0以下であった。

【0084】次に、上記の磁石粉末に2質量%のエポキシ樹脂を混練した後、 $5.9 \times 10^8 \text{ Pa}$ のプレス成形圧力にて直径10mm高さ7mmの円柱状成形体を作製した。その後、成形体に対して大気中にて150℃で1\*

\*時間のキュアリング処理を行い、ボンド磁石を作製した。表3に、このボンド磁石の磁石特性および磁粉充填密度を示す。ここで、磁粉充填密度は「磁粉の体積／ボンド磁石の体積」によって計算した。

【0085】

【表3】

|     | No. | 圧縮成形ボンド磁石の磁気特性  |                       |                                    | 磁粉充填率<br>(%) |
|-----|-----|-----------------|-----------------------|------------------------------------|--------------|
|     |     | $B_r(\text{T})$ | $H_{oj}(\text{kA/m})$ | $(BH)_{\text{max}}(\text{kJ/m}^3)$ |              |
| 実施例 | 1   | 0.99            | 243                   | 56                                 | 81           |
|     | 2   | 0.89            | 264                   | 61                                 | 82           |
|     | 3   | 0.93            | 297                   | 71                                 | 84           |
|     | 4   | 0.67            | 598                   | 54                                 | 85           |
|     | 5   | 0.98            | 310                   | 72                                 | 82           |
|     | 6   | 0.95            | 358                   | 76                                 | 83           |
| 比較例 | 7   | 0.93            | 248                   | 50                                 | 77           |
|     | 8   | 0.83            | 299                   | 59                                 | 76           |
|     | 9   | 0.86            | 354                   | 65                                 | 75           |

【0086】表3からわかるように、本発明による圧縮成形ボンド磁石では80%以上の高い磁粉充填率が達成されている。

【0087】(比較例)表1の比較例No. 7～9は、上記実施例について説明した工程と同様の工程によって作製した。実施例との相違点は、合金溶湯の急冷に際してロール表面速度を15m/秒以上30m/秒以下に調節し、それによって急冷合金薄帯の厚さを20μm以上65μm以下にした点にある。

【0088】比較例について、磁石粉の磁気特性および短軸／長軸比を表2に示し、圧縮成形ボンド磁石の磁石特性および磁粉充填率を表3に示す。表2からわかるように、比較例の短軸／長軸比は0.3未満である。また、表3からわかるように、比較例の磁粉充填率は80%未満である。なお、ここでの磁粉充填率は、磁石粉末体積／ボンド磁石体積で示される。

【0089】図6は、本発明による粉末を圧縮成形して作製したボンド磁石の断面SEM写真である。これに対して、図7は、MQI社製の製品名MQP-Bの粉末を圧縮成形して作製したボンド磁石(比較例)の断面SEM写真である。本発明による場合、粒径が40μm以上の粉末粒子の60重量%以上が0.3以上の短軸／長軸比を有している。比較例の場合、粒径が0.5μm以下の粉末粒子の中には0.3以上の短軸／長軸比を有しているものも含まれているかもしれないが、粒径が40μm以上の粉末粒子の大半は0.3未満の短軸／長軸比を有している。

【0090】

【発明の効果】本発明によれば、成形時における充填性

および流動性を改善した鉄基合金永久磁石粉末が得られる。この鉄基合金永久磁石粉末を用いることによって、磁粉充填率が改善されたボンド磁石および当該ボンド磁石を備えた電気機器が提供される。

【図面の簡単な説明】

【図1】(a)は、本発明に関して粉砕前の合金薄帯および粉砕後の粉末粒子を模式的に示す斜視図であり、

(b)は、従来技術に関して粉砕前の合金薄帯および粉砕後の粉末粒子を模式的に示す斜視図である。

【図2】(a)は、本発明に好適に使用され得るメルトスピニング装置(単ロール装置)の一構成例を示す図であり、(b)は、その部分拡大図である。

【図3】本発明の実施例に関する粉末X線回折パターンを示すグラフである。

【図4】本発明で用いられるピンミル装置の構成を示す図である。

【図5】図4のピンミル装置のピン配列を示す図である。

【図6】本発明によるボンド磁石の断面SEM写真である。

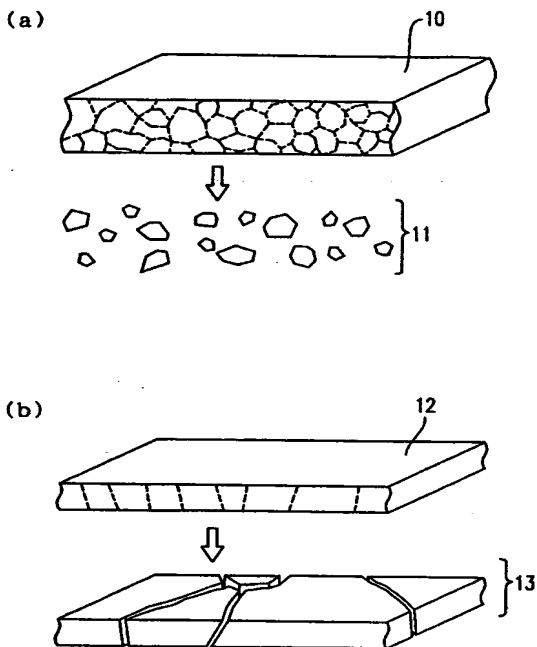
【図7】比較例のボンド磁石の断面SEM写真である。

【符号の説明】

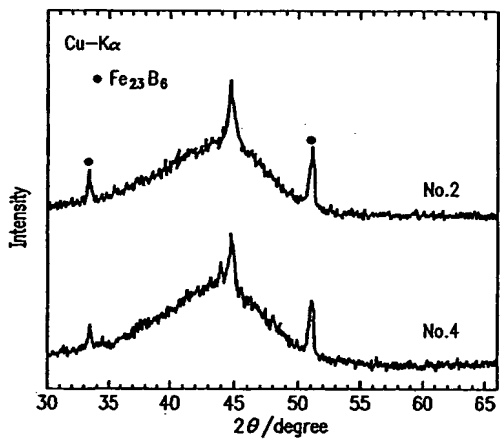
- 1 溶解室
- 2 急冷室
- 3 溶解炉
- 4 貯湯容器
- 5 出湯ノズル
- 6 ロート
- 7 回転冷却ロール

- 17  
 1 a、2 a、8 a ガス排気口  
 10 本発明の場合の合金薄帯  
 11 本発明による粉末粒子

【図1】



【図3】

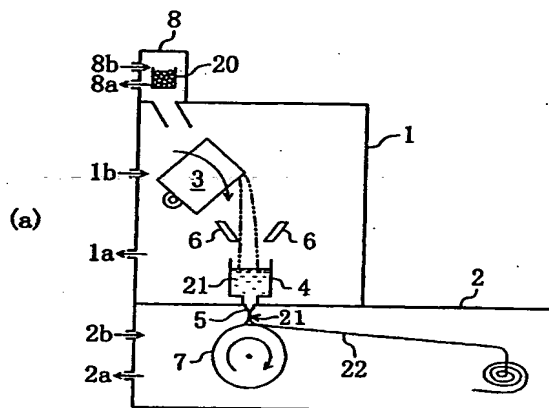


(10)

特開2001-244107

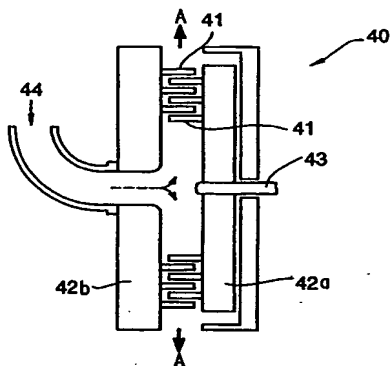
- 18  
 12 従来技術の場合の合金薄帯  
 13 従来技術による粉末粒子  
 20 原料

【図2】

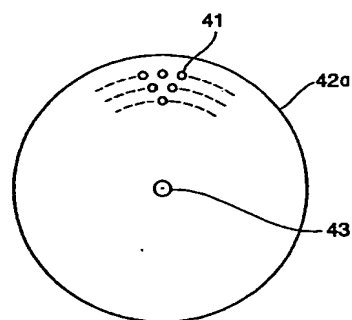


(b)

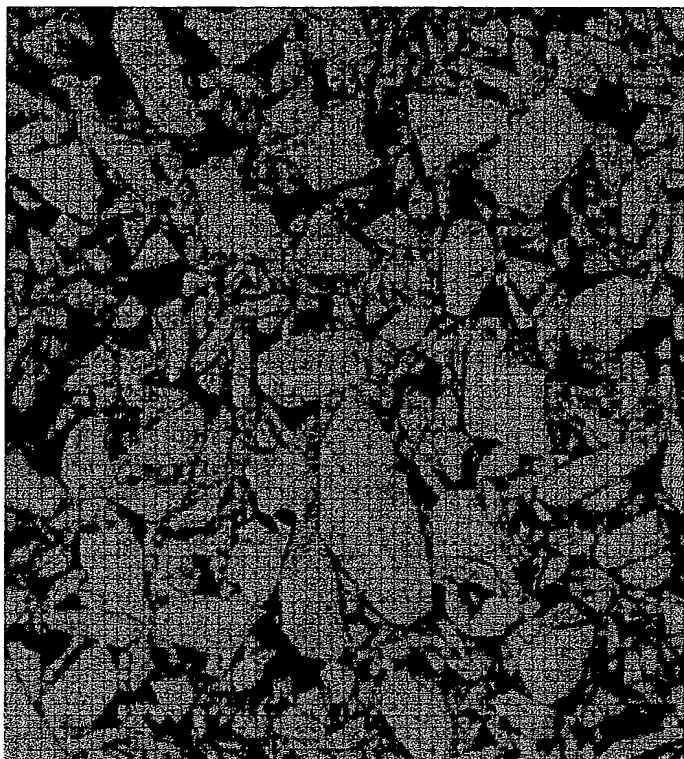
【図4】



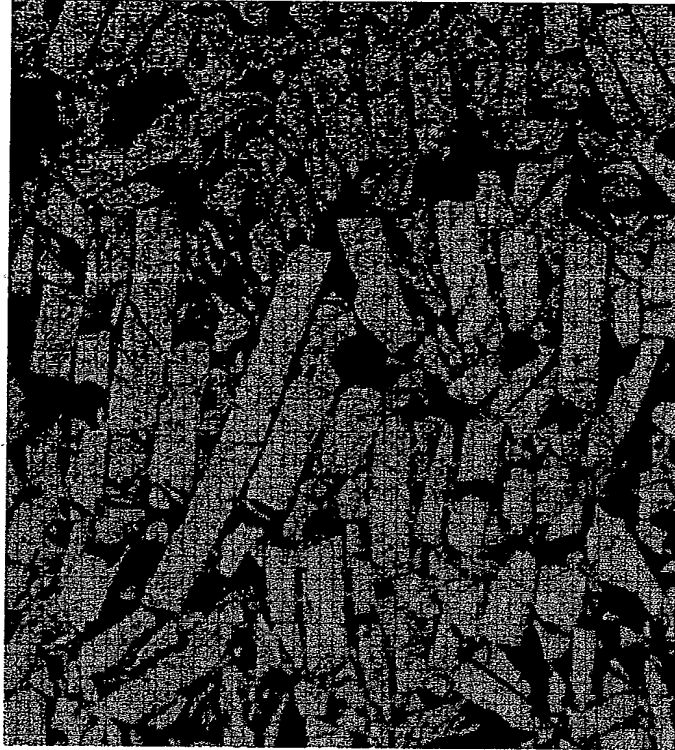
【図5】



【図6】



【図7】



フロントページの続き

(51) Int. Cl.<sup>7</sup>

C 2 2 C 38/00

H 0 1 F 1/04

1/08

41/02

識別記号

3 0 3

F I

H 0 1 F 1/08

41/02

1/06

1/04

キーワード (参考)

A

G

A